

**PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**

(11)Publication number : 07-304644

(43)Date of publication of application : 21.11.1995

(51)Int.Cl.

A61K 7/42

(21)Application number : 07-110679

(71)Applicant : UNILEVER NV

(22)Date of filing : 09.05.1995

(72)Inventor : GUERRERO ANGEL A  
KLEPACKY THOMAS C

(30)Priority

Priority number : 94 239660 Priority date : 09.05.1994 Priority country : US

**(54) SUNSCREEN COMPOSITION****(57)Abstract:**

**PURPOSE:** To obtain the subject composition, comprising an ethylene/vinyl acetate copolymer, acrylic polymer particles, a specific organic sunscreen agent, etc., and capable of maximizing the sun protection factor(SPF) but minimizing the level of a chromophoric monomer organic compound.

**CONSTITUTION:** This composition comprises (A) about 0.01-10 wt.% ethylene/vinyl acetate copolymer, (B) about 0.01-10 wt.% acrylic polymer particles, (C) about 0.1-30 wt.% organic sunscreen agent having a chromophoric group active within the ultraviolet radiation range from 290 to 400 nm wavelength and (D) about 60-99.5 wt.% pharmaceutically acceptable carrier. The ingredient B is poly(methyl methacrylate) and has 0.001-5  $\mu\text{m}$  average particle diameter and is present in an amount of about 0.8-1.5 wt.%. The ingredient A is present in an amount of about 0.1-2 wt.% and the water and oil are present to form an emulsion. The composition preferably further contains (E) about 0.01-10 wt.%  $\beta$ -glucan and (F) about 0.01-10 wt.% sclerotium gum.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination] 28.02.1996

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2857345

[Date of registration] 27.11.1998

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right] 27.11.2002

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

\* NOTICES \*

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to a sunscreen constituent especially a lotion, and the sunscreen constituent of a cream gestalt.

[0002]

[Description of the Prior Art] Generally the sunscreen constituent is used in the case of field labor or leisure, in order to protect the skin exposed from the suntan accompanied by a pain. Much effective sunscreen pharmaceutical preparation is marketed and it is indicated by cosmetics or remedy reference. Generally sunscreen pharmaceutical preparation is prepared with the gestalt of the cream which contains an ultraviolet absorption nature compound as an active principle, a lotion, or oil. An active principle functions by intercepting passage of an erythema valence radiation and preventing osmosis on the skin of this radiation.

[0003] To skin tissue, ideal sunscreen pharmaceutical preparation is avirulent and non-stimulative, and can be used to the shape of a uniform continuation coat exactly well. Pharmaceutical preparation must fully be physically [ chemically and ] stable, and there must be so that the shelf life which can be admitted may be given. Especially the thing for which pharmaceutical preparation holds the protective effect over the long duration after use is desirable. The active principle when existing on the skin needs to be resistance to chemical or abatement by the absorption to optical decomposition and the skin, sweating, sebum (skin oil), or moisture. For a fine sight, pharmaceutical preparation is \*\*\*\* which is no odor substantially (or it may aromatize), and is good not to color the skin or clothes.

[0004] A sunscreen agent can be classified into order with high effectiveness at an altitude chromophore monomer organic compound, an inorganic compound, and the degree chromophore polymer of low organic solid-state.

[0005] The U.S. Pat. No. 5,219,558 description (Woodin, Jr. et al.) and the U.S. Pat. No. 4,919,934 description (Decker et al.) are indicating the protection-from-light (photoprotection) constituent which contains various chromophore monomer organic compounds as an effective sunscreen agent. In the example, the common sunscreen of marketing like octyl methoxycinnamate (Parsol MCX), a benzophenone -3 (oxybenzone), and the octyl dimethyl PABA is used.

[0006] A chromophore monomer organic compound has a problem of a certain kind. There must be this compound in resistance to abatement by sweating, sebum, or moisture, when it exists on the skin. Therefore, the pharmaceutical preparation containing this matter needs an additive that it should secure fixable (substantivity). However, skill, waterproofness, and friction omission resistance are never thoroughly attained using the best additive. Another, probably more important problem is skin irritation. The U.S. Pat. No. 5,041,281 description and U.S. Pat. No. 4,917,883 description of Strobridge are referred to for all that have reported the oil-in-water-type-emulsion sunscreen made into waterproofness using the copolymer of ethylene and vinyl acetate, concerning this point. A person quite sensitive to the organic molecule containing a chromophore radical also gets down, and a harmful allergic response can be caused. Therefore, it is quite desirable to stop the level of the compound applied in a sunscreen constituent to the minimum. Now, it is impossible to replace a chromophore organic compound thoroughly in the high SPF constituent as which a certain kind of fine sight is also required, although it is desirably.

[0007] The inorganic granular compound like a titanium dioxide is also used as a sunscreen agent. The titanium dioxide is actually quite popular to the vendor who is advertizing them as a "natural sunscreen agent." The problem concerning an inorganic granular compound is that the high sun protection factor is not obtained, if this matter is not used by high concentration. Though regrettable, a fine sight is spoiled in such high concentration. If transparent pharmaceutical preparation becomes opaque and is used, it will form a visible white coat on the skin, and will be sensed for minus by the consumer. [ more ]

[0008] A polymer organic particle is included by the category of the last of the matter used for sunscreen pharmaceutical preparation. The U.S. Pat. No. 5,008,100 description (Zecchino et al.) has reported the oil-in-water type emulsion which contains a polyethylene particle as an auxiliary effective sunscreen agent together with the conventional chromophore organic compound. A polymer particle is inferior in sunscreen effectiveness like an inorganic material. Using this ingredient so much has an adverse effect on a pharmaceutical preparation fine sight.

[0009] Therefore, although the object of this invention makes a sunscreen characteristic the highest, the level of a chromophore monomer organic compound is offering the sunscreen constituent pressed down to the minimum.

[0010] Another object of this invention is offering the sunscreen constituent of an oily water emulsion gestalt in which the fine sight which was excellent when it was used for the skin is shown.

[0011] Still more nearly another object of this invention is offering a sunscreen constituent with much few stimuli to Homo sapiens than the pharmaceutical preparation which has the sunscreen characteristic of equivalence.

[0012] The above-mentioned object and other objects of this invention will become clear from the following explanation and an example easily.

[0013]

[Means for Solving the Problem] The sunscreen constituent offered by this invention is the ethylene / vinyl acetate copolymer of (i) abbreviation 0.01 - 10 % of the weight of abbreviation.;

(ii) Acrylic polymer particle of about 0.01 - 10 % of the weight of abbreviation;

(iii) organic sunscreen agent; which has an activity chromophore radical in about 30% of the weight of 290-400nm ultraviolet rays, and about 0.1 - (iv) about 60- the support in which acceptance on [ about 99.5% of the weight of ] a remedy is possible is included.

[0014] When ethylene / vinyl acetate copolymer, and the acrylic polymer particle were combined, it was found out that the sunscreen characteristic (SPF) of the constituent containing a chromophore organic sunscreen agent may be raised remarkably. Although ethylene / vinyl acetate (EVA) copolymer was used for the sunscreen constituent from the former, this matter was blended as a thickener until now. The EVA copolymer is recommended also for water proof ability. This copolymer's having a remarkable SPF lifting operation is found out for the first time this time.

[0015] The EVA copolymer of this invention is formed from the ethylene monomer 2, i.e.,  $\text{CH}_2=\text{CH}_2$  and a vinyl acetate monomer, i.e.,  $\text{CH}_3\text{COOH}=\text{CH}$ . This polymer is expressed with formula  $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_x(\text{CH}_2\text{CHOOCHCH}_3)_y$ . x:y ratios are about 20:1 - abbreviation 4:1 preferably, and are 12:1-6:1 more preferably. Average molecular weight can be made into about 2,000 - abbreviation 2,000,000. the degree of hardness (dmn ASTM-D-5) of an EVA copolymer -- desirable - - about 4- about 80 -- it is about 9.5 most preferably. The dropping point (ASTMD3954) is about 95 degrees C most preferably about 60 - 103 degrees C of abbreviation. As for an EVA copolymer, it is desirable to add to a constituent with the gestalt of the particle which has mean particle diameter small enough so that it may distribute easily in the oil phase of an emulsion.

[0016] The amount of the EVA copolymer suitable for the constituent of this invention is [ about 0.5 - 10 % of the weight of abbreviation ] 0.2 - 0.5 % of the weight the optimal about 0.1 - 2 % of the weight of abbreviation more preferably.

[0017] An EVA copolymer is Allied. Signal From Corporation, the most desirable thing is marketed by name-of-article AC-400. As other useful EVA copolymers, it is Allied. It is DuPont to name-of-article AC-400A made from Signal, AC-405, AC-4055, AC-405T and AC-430, and a list. Name of article Elvox made from Chemical 40P are mentioned.

[0018] The 2nd indispensable component of this invention constituent is an acrylic polymer. This especially polymer is a homopolymer guided from the monomer containing an ethyl acrylate, a

methyl acrylate, ethyl methacrylate, a methyl methacrylate, butyl acrylate, and methacrylic-acid butyl. The most desirable one is Wackherr. From France to S.A. and a name of article Covabead It is Pori (methyl methacrylate) of the shape of a micro bead marketed as PMMA. Although particle size of an acrylic polymer can be set to less than about 0.001-5micro, about 0.01-3micro is desirable, and the optimal thing is about 0.1-1micro.

[0019] The amount of an acrylic polymer is [ about 0.01 - 10 % of the weight of abbreviation ] about 0.8 - 1.5 % of the weight the optimal about 0.1 - 5 % of the weight of abbreviation preferably.

[0020] The 3rd indispensable component of this invention constituent is an organic sunscreen agent which has at least one sort of chromophore radicals which absorb 290-400nm one of ultraviolet rays.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-304644

(43) 公開日 平成7年(1995)11月21日

(51) Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

P 1

技術表示箇所

A 61 K 7/42

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願平7-110679	(71) 出願人	590003065 ユニリーバー・ナームローゼ・ベンノート シヤープ オランダ国ロッテルダム、ヴェーナ 455
(22) 出願日	平成7年(1995)5月9日	(72) 発明者	アンジェル・オーギュスト・ゲレーロ アメリカ合衆国、コネティカット・06484、 ハンティントン、カリ・ドライブ・6
(31) 優先権主張番号	239660	(72) 発明者	トーマス・チャールズ・クレバツキー アメリカ合衆国、コネティカット・06484、 シエルトン、バーバラ・ドライブ・18
(32) 優先日	1994年5月9日	(74) 代理人	弁理士 川口 義雄 (外2名)
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

(54) 【発明の名称】 日焼け止め組成物

(57) 【要約】

【構成】 エチレン/酢酸ビニルコポリマーと、ポリ  
(メタクリル酸メチル) のごときアクリル系ポリマー  
と、290～400nmの範囲の紫外線を吸収し得る発  
色団有鍍日焼け止め剤とを含む化粧品日焼け止め組成物  
を提供する。

【効果】 エチレン/酢酸ビニルコポリマー及びアクリ  
ル系ポリマーは、相互作用して有鍍日焼け止め剤のSP  
F値を上昇させる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (i) 約0.01~約10重量%のエチレン/酢酸ビニルコポリマー；

(ii) 約0.01~約10重量%のアクリル系ポリマー粒子；

(iii) 約0.1~約30重量%の、290~400nmの紫外線において活性な発色団基を有する有機日焼け止め剤；及び

(iv) 約60~約99.5重量%の医薬上容認可能な担体

を含む日焼け止め組成物。

【請求項2】 前記アクリル系ポリマーがポリ(メタクリル酸メチル)である請求項1に記載の組成物。

【請求項3】 前記アクリル系ポリマーが平均粒径0.001~5μm未満を有する請求項1に記載の組成物。

【請求項4】 前記アクリル系ポリマーが約0.8~約1.5重量%の量で存在する請求項1に記載の組成物。

【請求項5】 前記エチレン/酢酸ビニルコポリマーが約0.1~約2重量%の量で存在する請求項1に記載の組成物。

【請求項6】 水分と油分が存在してエマルジョンを形成している請求項1に記載の組成物。

【請求項7】 更に約0.01~約10重量%のβ-グルカンを含む請求項1に記載の組成物。

【請求項8】 更に約0.01~約10重量%の苗核ゴムを含む請求項1に記載の組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は日焼け止め組成物、特にローション及びクリーム形態の日焼け止め組成物に係わる。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 日焼け止め組成物は、痛みを伴う日焼けから露出した皮膚を保護するために野外労働またはレジャーの際に一般に使用されている。多数の効果的な日焼け止め製剤が市販されており、化粧品または医薬文庫に記載されている。一般に日焼け止め製剤は、有効成分として紫外線吸収性化合物を含むクリーム、ローションまたはオイルの形態で調製されている。有効成分は、紅斑誘発性放射線の通過を遮断して該放射線の皮膚への浸透を防止することにより機能する。

【0003】 理想的な日焼け止め製剤は皮膚組織に対して無毒性且つ非刺激性であり、均一な連続皮膜状にちょうど良く施用し得るべきである。製剤は、容認可能な保管寿命を与えるよう化学的及び物理的に十分に安定であらねばならない。製剤がその保護効果を施用後長時間にわたって保持することは特に望ましい。皮膚上に存在するときの有効成分は、化学的または光学的分解、皮膚への吸収、発汗、皮脂(skin oil)または水分に

よる排除に対して耐性である必要がある。美観のためには、製剤は実質的に無臭である(または若くし得る)べきであり、また皮膚または衣服に着色しないのがよい。

【0004】 日焼け止め剤は、有効性が高い順に、高度発色団モノマー有機化合物、無機化合物、低度発色団ポリマー有機固体に分類し得る。

【0005】 米国特許第5,219,558号明細書(Woodin, Jr.ら)及び米国特許第4,919,934号明細書(Deckerら)は、有効日焼け止め剤として種々の発色団モノマー有機化合物を含む遮光(photoprotection)組成物を開示している。実施例では、オクチルメトキシシナメート(Parsol MCX)、ベンゾフェノン-3(オキシベンゾン)及びオクチルジメチルPABAのごとき市販の一般日焼け止めを使用している。

【0006】 発色団モノマー有機化合物はある種の問題を有する。かかる化合物は、皮膚上に存在するとき、発汗、皮脂または水分による排除に対して耐性であらねばならない。従って、かかる物質を含む製剤は定着性(substantivity)を確保すべく添加剤を必要とする。しかしながら、最良の添加剤を用いてさえ、防水性及び摩擦落ち抵抗は決して完全には達成されない。別の、そして恐らくより重要な問題は、皮膚刺激性である。この点に関し、例えばエチレンと酢酸ビニルのコポリマーを用いて防水性にされた水中油滴型エマルジョン日焼け止めを報告している。いずれもStrobridgeの米国特許第5,041,281号明細書及び米国特許第4,917,883号明細書が参照される。発色団基を含む有機分子にかなり敏感な人もおり、有害なアレルギー反応を起こし得る。従って、日焼け止め組成物中のかかる化合物のレベルを最少限に抑えることはかなり望ましい。発色団有機化合物を完全に置き換えることは、望ましくはあるが、ある種の美観も要求される高SPF組成物では現在のところ不可能である。

【0007】 二酸化チタンのごとき無機粒状化合物も日焼け止め剤として使用されている。実際に二酸化チタンは、それらを「天然日焼け止め剤」として宣伝している販売業者にはかなり好評である。無機粒状化合物に係わる問題は、かかる物質を高濃度で用いないと高SPF値が得られないことである。残念ながら、そのような高濃度では美観が損なわれる。透明な製剤は不透明になり、多めに使用すると皮膚上に可視の白色皮膜を形成し、消費者にはマイナスに感じられる。

【0008】 ポリマー有機粒子は、日焼け止め製剤に使用される物質の最後のカテゴリーに含まれる。米国特許第5,008,100号明細書(Zecchinoら)は、従来の発色団有機化合物と一緒に補助有効日焼け止め剤としてポリエチレン粒子を含む水中油滴型エマルジョンを報告している。無機材料と同様に、ポリマー粒子は日焼け止め有効性において劣る。かかる材料を多

意に使用することは、製剤美観に悪影響を及ぼす。

【0009】従って本発明の目的は、日焼け止め指数を最高にするが、発色団モノマー有機化合物のレベルは最少限に抑えた日焼け止め組成物を提供することである。

【0010】本発明の別の目的は、皮膚に施用したときに優れた美観を示す油乳化エマルジョン形態の日焼け止め組成物を提供することである。

【0011】本発明の更に別の目的は、等価の日焼け止め指数を有する製剤よりヒトに対する刺激がずっと少ない日焼け止め組成物を提供することである。

【0012】本発明の上記目的及び他の目的は以下の説明及び実施例から容易に明らかとなる。

【0013】

【課題を解決するための手段】本発明により提供される日焼け止め組成物は、

(i) 約0.01〜約10重量%のエチレン/酢酸ビニルコポリマー；

(ii) 約0.01〜約10重量%のアクリル系ポリマー粒子；

(iii) 約0.1〜約30重量%の、290〜400 nmの紫外線において活性な発色団基を有する有機日焼け止め剤；及び

(iv) 約60〜約99.5重量%の医薬上容認可能な担体を含む。

【0014】エチレン/酢酸ビニルコポリマーとアクリル系ポリマー粒子とを組合せると、発色団有機日焼け止め剤を含む組成物の日焼け止め指数(SPF)を著しく上昇させることができ見出された。エチレン/酢酸ビニル(EVA)コポリマーは従来から日焼け止め組成物に使用されているが、これまではこの物質は増粘剤として配合されていた。EVAコポリマーは防水能のためにも推奨されている。該コポリマーが著しいSPF上昇作用を有し得ることは今回初めて見出されたことである。

【0015】本発明のEVAコポリマーはエチレンモノマー、即ち $\text{CH}_2=\text{CH}_2$ と酢酸ビニルモノマー、即ち $\text{CH}_2\text{COOH}=\text{CH}_2$ とから形成される。このポリマーは式 $\text{CH}_2(\text{CH}_2)_x(\text{CH}_2)_y\text{CH}_2\text{COOCH}_2\text{CH}_3$ で表わされる。x:y比は好ましくは約20:1〜約4:1であり、より好ましくは12:1〜6:1である。平均分子量は約2,000〜約2,000,000と心得る。EVAコポリマーの硬度(dmn ASTM D-5)は好ましくは約4〜約80、最も好ましくは約9.5である。熔点(ASTM D3954)は好ましくは約60〜約103℃、最も好ましくは約95℃である。EVAコポリマーは、エマルジョンの油相中に容易に分散するように十分に小さい平均粒径を有する粒子の形態で組成物に添加するのが好ましい。

【0016】本発明の組成物に適用したEVAコポリマーの量は、約0.5〜約10重量%、より好ましくは約

0.1〜約2重量%、最悪には0.2〜0.5重量%である。

【0017】EVAコポリマーはAllied Signal Corporationから、最も好ましいものは品名AC-400で市販されている。他の有用なEVAコポリマーとしては、Allied Signal製の品名AC-400A、AC-405、AC-4055、AC-405T及びAC-430、並びにDuPont Chemical製の品名Elvax 40Pが挙げられる。

【0018】本発明組成物の第2の必須成分はアクリル系ポリマーである。特に該ポリマーは、アクリル酸エチル、アクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸ブチル及びメタクリル酸ブチルを含むモノマーから誘導されるホモポリマーである。最も好ましいのは、Wackherr S. A.、フランスから品名Covabead PMMAとして市販されているマイクロビーズ状のポリ(メタクリル酸メチル)である。アクリル系ポリマーの粒径は約0.001〜5 μm未満とし得るが、好ましいのは約0.01〜3 μm、最適なものは約0.1〜1 μmである。

【0019】アクリル系ポリマーの量は約0.01〜約10重量%、好ましくは約0.1〜約5重量%、最適には約0.8〜1.5重量%である。

【0020】本発明組成物の第3の必須成分は、290〜400 nmのいずれかの紫外線を吸収する少なくとも1種の発色団基を有する有機日焼け止め剤である。発色団有機日焼け止め剤は、以下のカテゴリー(特定の例を示す)に分類し得る：p-アミノ安息香酸、その塩及びその誘導体(エチル、イソブチル、グリセリルエステル；p-ジメチルアミノ安息香酸)；アントラニレート(即ちo-アミノベンゾエート；メチル、メンチル、フェニル、ベンジル、フェニルエチル、リナリル、テルビニル及びシクロヘキセニルエステル)；サリチレート(オクチル、アミル、フェニル、ベンジル、メンチル、グリセリル及びジブチレングリコールエステル)；ケイ皮酸誘導体(メンチル及びベンジルエステル、α-フェニルシンナモニトリル；ブチルシンナモイルビルベート)；ジヒドロキシケイ皮酸誘導体(ウンベリフェロン、メチルウンベリフェロン、メチルアセト-ウンベリフェロン)；トリヒドロキシケイ皮酸誘導体(エスクレチン、メチルエスクレチン、ダフネチン、並びにグルコシド、エスクリン及びダフニン)；炭化水素(ジフェニルブタジエン、スチルベン)；ジベンザルアセトン及びベンザルアセトフェノン；ナフトールスルホネート(2-ナフトール-3,6-ジスルホン酸及び2-ナフトール-6,8-ジスルホン酸のナトリウム塩)；ジヒドロキシナフトエ酸及びその塩；o-及びp-ヒドロキシフェニルジスルホネート；クマリン誘導体(7-ヒドロキシ、7-メチル、3-フェニル)；ジアゾール(2



ーアセチル-3-ブロモインダゾール、フェニルベンゾ  
オキサゾール、メチルナフトキサゾール、種々のアリー  
ルベンゾチアゾール；キニン塩（ビスルフェート、ス  
ルフェート、クロリド、オレエート及びタンネート）；  
キノリン誘導体（8-ヒドロキシキノリン塩、2-フェ  
ニルキノリン）；ヒドロキシ-またはメトキシ-置換ベン  
ゾフェノン；尿酸及びピロール酸（*pylouric acid*）；タンニン酸及びその誘導体（例えばヘキ  
サエチルエーテル）；（ブチルカルピチル）（6-プロ  
ピルピロニル）エーテル；ヒドロキノン；ベンゾフェ  
ノン（オキシベンゼン、スリッベンゼン、ジオキシベン  
ゼン、ベンゾレソルシノール、2, 2', 4, 4'-テ  
トラヒドロキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキ  
シ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、オクタベン  
ゼン）；4-イソプロピルジベンゾイルメタン；ブチル  
メトキシジベンゾイルメタン；エトクリレン；及び4-  
イソプロピル-ジベンゾイルメタン。

【0021】特に有効なもの、2-エチルヘキシル  
p-メトキシシナメート、4, 4'-1-ブチルメト  
キシジベンゾイルメタン、2-ヒドロキシ-4-メトキ  
シベンゾフェノン、オクチルジメチル p-アミノ安息  
香酸、ジガロイルトリオレエート、2, 2'-ジヒドロキ  
シ-4-メトキシベンゾフェノン、エチル 4-【ビス  
（ヒドロキシプロピル）】アミノベンゾエート、2-エ  
チルヘキシル-2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリ  
レート、2-エチルヘキシルサリチラート、グルセリル  
p-アミノベンゾエート、3, 3, 5-トリメチルシ  
クロヘキシルサリチラート、メチルアントラニラート、  
p-ジメチルアミノ安息香酸またはアミノベンゾエ  
ート、2-エチルヘキシル p-ジメチルアミノベンゾエ  
ート、2-フェニルベンズイミダゾール-5-スルホン  
酸、2-（p-ジメチルアミノフェニル）-5-スルホ  
ニオ安息香酸及びこれらの混合物である。

【0022】上記日焼け止め剤の量は通常約0.1〜約  
30重量％、好ましくは約2〜約20重量％、最適には  
約4〜約10重量％である。

【0023】本発明組成物は水性または無水物のいずれ  
かとし得るが、組成物は水性、特にW/OまたはO/W  
型の油水エマルジョンであるのが好ましい。水は、存在  
する場合には、約5〜約90重量％、好ましくは約35  
〜約65重量％、最適には約40〜約50重量％の量と  
し得る。

【0024】水のはかに、比較的揮発性の溶剤を本発明  
組成物に配合してもよい。最も好ましいのは一価のC  
<sub>1</sub>〜<sub>4</sub>アルカノールであり、これにはエチルアルコール、  
メチルアルコール及びイソプロピルアルコールが含まれ  
る。一価のアルカノールの量は約5〜約50重量％、好  
ましくは約15〜約40重量％、最適には約25〜約3  
5重量％とし得る。

【0025】シリコーン油及び合成エステル形態で皮

膚軟化剤を本発明組成物に配合してもよい。皮膚軟化剤  
の量は約0.1〜約30重量％、好ましくは約1〜20  
重量％とし得る。

【0026】シリコーン油は揮発性のものと非揮発性の  
ものとに分類し得る。本明細書において使用される「揮  
発性」なる用語は、周囲温度で測定可能な蒸気圧を有す  
る物質を指す。揮発性シリコーン油は、約3〜約9個、  
好ましくは約4〜約5個のケイ素原子を含む環状または  
線状ポリジメチルシロキサンから選択されるのが好まし  
い。

【0027】線状揮発性シリコーン材料は通常は25℃  
において約5センチストローク未満の粘度を有し、環状  
揮発性シリコーン材料は一般に約10センチストローク  
未満の粘度を有する。

【0028】皮膚軟化剤として有用な非揮発性シリコー  
ン油としてはポリアルキルシロキサン、ポリアルキルア  
リールシロキサン及びポリエーテルシロキサンコポリマ  
ーが挙げられる。本発明で有用な実質的に非揮発性のポ  
リアルキルシロキサンとしては、例えば、25℃におい  
て約5〜約100, 000センチストロークの粘度を有  
するポリジメチルシロキサンが挙げられる。本発明組成  
物で有用な好ましい非揮発性皮膚軟化剤は、25℃におい  
て約10〜約400センチストロークの粘度を有する  
ポリジメチルシロキサンである。

【0029】エステル皮膚軟化剤としては、

（1）10〜20個の炭素原子を有する脂肪酸のアルケ  
ニルまたはアルキルエステル（例えばイソノニルイソナ  
ノエート、オレイルミリステート、オレイルステアレ  
ート及びオレイルオレエート）；

（2）エーテルエステル（例えばエトキシル化脂肪アル  
コールの脂肪酸エステル）；

（3）多価アルコールエステル（例えばエチレングリコ  
ールモノ-及びジ-脂肪酸エステル、ジエチレングリコ  
ールモノ-及びジ-脂肪酸エステル、ポリエチレングリ  
コール（200〜6000）モノ-及びジ-脂肪酸エス  
テル、プロピレングリコールモノ-及びジ-脂肪酸エス  
テル、ポリプロピレングリコール2000モノオレエ  
ート、ポリプロピレングリコール2000モノステアレ  
ート、エトキシル化プロピレングリコールモノステアレ  
ート、グルセリルモノ-及びジ-脂肪酸エステル、ポリグ  
リセロールポリ脂肪酸エステル、エトキシル化グルセリ  
ルモノステアレート、1, 3-ブチレングリコールモノス  
テアレート、1, 3-ブチレングリコールジステアレ  
ート、ポリオキシエチレンポリオール脂肪酸エステル、ソ  
ルビタン脂肪酸エステル、及びポリオキシエチレンソ  
ルビタン脂肪酸エステルが満足の行く多価アルコールエ  
ステルである）；

（4）ろうエステル（例えば直ろう、鯨ろう、ミリスチ  
ルミリステート、ステアールステアレート）；

（5）ステロールエステル（例えばそのコレステロール

脂肪酸エステル)

が挙げられる。

【0030】最も好ましいエステルはオクチルドデシルネオペンタノエート(Elefac1-205(登録商標))として入手可能)及びイソノニルイソノナノエートである。

【0031】10~30個の炭素原子を有する脂肪酸を本発明組成物に配合することもできる。この例としてペラルゴン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、イソステアリン酸、ヒドロキシステアリン酸、オレイン酸、リノール酸、リシノール酸、アラキドン酸、ベヘン酸及びエルカ酸が挙げられる。

【0032】多価アルコール系保湿剤を本発明組成物に配合することもできる。保湿剤は、皮膚軟化剤の有効性を高める助けとなったり、鱗屑形成を低減したり、堆積した鱗屑の排除を刺激したり、皮膚触感を向上する。典型的な多価アルコールとしてはグリセロール、ポリアルキレングリコール及びより好ましくはアルキレンポリオール及びそれらの誘導体。例えばプロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリエチレングリコール及びその誘導体、ソルビール、ヒドロキシプロピルソルビール、ヘキシレングリコール、1,3-ブチレングリコール、1,2,6-ヘキサントリオール、エトキシ化グリセロール、プロポキシ化グリセロール及びこれらの混合物が挙げられる。最良の結果を得るためには保湿剤はプロピレングリコールであるのが好ましい。保湿剤の量は組成物の0.5~30重量%、好ましくは1~15重量%とし得る。

【0033】組成物の約0.01~約5重量%の量の増粘剤/粘度上昇剤を配合することもできる。当業者には周知のように、増粘剤の厳密な量は、所望される組成物のコンシステンシー及び粘度に従う。増粘剤の例としてはキサンタンゴム、ナトリウムカルボキシメチルセルロース、ヒドロキシアルキル及びアルキルセルロース(特にヒドロキシプロピルセルロース)、及び架橋アクリル酸ポリマー、例えばB. F. Goodrichにより商標Carbopolで販売のものが挙げられる。

【0034】水、溶剤、シリコン、エステル、脂肪酸、保湿剤及び/または増粘剤は総括して、本発明の日焼け止め剤の医薬的に容認可能な担体として見なされる。担体の総量は約1~約99.9重量%、好ましくは約80~99.9重量%である。

【0035】本発明の化粧品組成物は任意の形態とし得る。かかる形態としては、ローション、クリーム、スティック、ロールオン方式、ムース、エアロゾル、スプレー、及びパッド適用方式が挙げられる。

【0036】本発明の化粧品組成物には界面活性剤が存在してもよい。界面活性剤の合計濃度は、組成物全体の約0.1~約40重量%、好ましくは約1~約20重量%、最適には約1~約5重量%である。界面活性剤は、

アニオン性、非イオン性、カチオン性及び両性界面活性剤からなる群から選択し得る。特に好ましい非イオン性界面活性剤は、疎水性物質1モル当たり約2~約100モルの酸化エチレンまたは酸化プロピレンと縮合された $C_{10-18}$ 脂肪アルコールまたは脂肪酸疎水性物質; 2~20モルの酸化アルキレンと縮合された $C_{10-18}$ アルキルフェノール; エチレングリコールのモノ-及びジ-脂肪酸エステル; 脂肪酸モノグリセリド; ソルビタン、モノ-及びジ- $C_{10-18}$ 脂肪酸; 及びポリオキシエチレンソルビタン並びにこれらの組合せである。アルキルポリグリコシド及び糖脂肪アミン(例えばメチルグルコシド)も適した非イオン性界面活性剤である。

【0037】好ましいアニオン性界面活性剤としては、せっけん、アルキルエーテルスルフェート及びスルホネート、アルキルスルフェート及びスルホネート、アルキルベンゼンスルホネート、アルキル及びジアルキルスルホスクシネート、 $C_{10-18}$ アシルイセチオネート並びにこれらの組合せが挙げられる。

【0038】本発明組成物は、 $C_{10-18}$ α-ヒドロキシカルボン酸及びそれらの塩を含んでもよい。塩はアルカリ金属、アンモニウム及び $C_{10-18}$ アルカノールアンモニウム塩であるのが好ましい。酸の例としては、グリコール酸、乳酸及び2-ヒドロキシカプリル酸が挙げられる。最も好ましいのはグリコール酸及び2-ヒドロキシカプリル酸並びにこれらのアンモニウム塩の組合せである。かかる材料の量は、化粧品組成物の約0.01~約15重量%、好ましくは約0.1~約8重量%、最適には約0.1~1重量%とし得る。

【0039】望ましくは、潜在的に有害な微生物の増殖から保護するため、保存剤を本発明の化粧品組成物に配合してもよい。本発明組成物に適した従来公知の保存剤としてはパラ-ヒドロキシ安息香酸のアルキルエステルが挙げられる。最近になって使用されるようになった他の保存剤として、ヒダントイン誘導体、プロピオン酸塩、及び種々の第四級アンモニウム化合物が挙げられる。化粧品業者は適当な保存剤に熟知しており、保存剤チャレンジ試験を満足すると共に製品に安定性を与えるよう常法で選択し得る。特に好ましい保存剤はフェノキシエタノール、メチルパラベン、プロピルパラベン、イミダゾリジニルウレア、ナトリウムデヒドロアセート及びベンジルアルコールである。保存剤は、組成物の用途、及び保存剤とエマルジョン中の他の成分とに起こり得る非相容性を配慮して選択すべきである。保存剤は、組成物の約0.01~約2重量%の量で使用するのが好ましい。

【0040】本発明の化粧品組成物には微量添加成分が存在してもよい。かかる成分としてはビタミン類(例えばビタミンB<sub>1</sub>、ビタミンC、ビタミンA、パルミテート、ビタミンEアセート、ビオチン、ナイアシン及びD-レバンテノール)が挙げられる。特に好ましいの

は、the Brooks Company, USAからVitazyme Cとして入手可能なビタミンC/ポリペプチド複合体の組合せである。ナイアシン、ビタミンB<sub>6</sub>及びビオチンはRoche Pharmaceuticalsから入手可能である。

【0041】他の添加成分として酵素系のものがある。特に好ましいのは、the Brooks Company, USAからBioce11 SODとして市販されているスーパーオキシドジスムターゼである。

【0042】再生可能発酵由来の天然植物性材料も多く、10の場合に化粧品組成物に望ましい。例えば本発明の化粧品組成物は、Nurture Inc., Missoula, Montanaから商標Microat SFで市販されている、オート麦由来のβ-グルカンを含み得る。別の天然材料としては、Alban Muller International/Tri-K Industries, Inc., Emerson, New JerseyからAmigel (登録商標)として市販されているCTFA名 菌核ゴムを有する重合グルコースが挙げられる。前記各材料の量は約0.01~約10重量%、好ましくは約0.05~約1重量%、最善には約0.1~0.5重量%とし得る。

【0043】着色料、香料、不透明剤及び研磨剤を本発明組成物に配合することもできる。これらの各物質は約0.05~約5重量%、好ましくは0.1~3重量%とし得る。

【0044】

【実施例】以下、実施例によって本発明の実施態様を更に説明する。本明細書及び特許請求の範囲において言及する全ての部、パーセント及び割合は、特に記載のない限り、重量によるものである。

【0045】実施例1

EVAコポリマーとポリ(メタクリル酸メチル)マイクロビーズによるSPFに対する効果を評価するために一連の実験を実施した。表1は、完全に製剤化されている

が日焼け止めを含まない基本組成物を示す。

【0046】日焼け止め剤を含むまたは含まない製剤化された組成物のin vitro SPFを、Optometrics USA, Inc. Ayer, マサチューセッツ製造のSPF-290アナライザーを用いて評価した。

【0047】SPF-290の光学系は、連続UV-VIS源、カラー補償フィルター、分散プレート、格子モノクロメーター及び検出器から構成されている。紫外線(UVB)及び近紫外線(UVA)はキセノンアークランプによって照射した。光源から放出された放射線は、太陽スペクトルをより近似するように減衰される。放射線ビームが試料に到達すると、そこで、サンプルまたは基板により透過、吸収または反射のいずれかが起こる。透過した放射線は、更にそれを減衰させる一連の分散プレートを通して。次いでビームはモノクロメーターに入り、最終的に単色放射線が検出器の感光表面に衝突すると、表面に衝撃を与えた放射線の強度に比例するシグナルを生ずる。

20 【0048】測定に際しては、ホルダーに支持されたTranspore (登録商標)テープ上に80μlのサンプルを塗布した。サンプルは、約40cm<sup>2</sup>の表面を被覆するように、6.4×6.4cm<sup>2</sup>の面積に塗布した。標準的なin vivo SPF試験に使用されるのと同様に2μl/cm<sup>2</sup>の量のサンプルを試験テープ上に分配した。サンプル組成物においてSPF測定値を収集した。

【0049】表1は、各々が基本組成物を使用すると共に種々の量の有機日焼け止め剤、EVAコポリマー及び/またはPMMAを含む組成物A~Hを示す。表1は、8種の組成物の日焼け止め活性をSPF値で示す。

【0050】

【表1】

表1

## 基本組成物

成分	重量%
Carbopol 1382(登録商標)(有効成分)	11.100
シクロメチコン	6.000
イソアラキシルネオペンタノエート	5.300
イソノニルイソノナノエート	2.500
Arlacel 166 V9(登録商標)(GMS/PEG)	1.700
BRIJ 721(登録商標)(植物性)	1.200
イソステアリン酸	1.200
トリエタノールアミン	1.020
セチルアルコール	1.000
Acilglyde-J Special(登録商標) (バイオ-ヒアルロン酸)	0.750
フェノキシエタノール	0.700
ビタミンE アセテート	0.500
蒸留抽出物	0.250
BRIJ 72(登録商標)(植物性)	0.300
メチルパラベン	0.300
Glydant(登録商標)	0.200
DL-パンテノール	0.200
C <sub>12-20</sub> 酸-PEG8エステル	0.200
トルラウレト-4-キスフエート	0.200
Silicone 200(10cst)	0.200
Microat 8P(登録商標)	0.200
ナイアシン	0.200

【0051】

\* \* 【表2】

Vitazyme C(登録商標)	0.100
スーパーオキシドジムスダーゼ	0.100
ビタミンB <sub>6</sub>	0.100
ビタミンAパルミテート	0.100
プロピルパラベン	0.100
Amigel(登録商標)	0.100
ジナトリウムEDTA	0.100
L-乳酸	0.010
ビオチン	0.001
脱イオン水	適量

【0052】

【表3】

表II

日焼け止め成分	A	B	C	D	E	F	G	H
有機日焼け止め剤	7	7	7	7	--	--	--	--
EVAコポリマー	--	0.2	0.3	--	0.3	0.3	--	--
PMMA	--	1.0	--	1.0	--	1.0	1.0	--
なし(基本組成物)	93	91.7	92.7	92	99.7	98.7	99	100

\*5%Parсол NCX及び2%ベンゾフェノン-3

【0053】

\*10\*【表4】

表III

日焼け止め活性	A	B	C	D	E	F	G	H
SPF	24.7	34.2	24.2	23.8	1.5	1.3	1.1	1.1

【0054】有機日焼け止め剤のみを含む基本組成物(組成物A)のSPF値24.7は、EVAコポリマー及びPMMAの存在下で34.2に増加したことが判る。本発明を示す組成物B参照。それぞれ組成物C及びDのようにEVAコポリマーまたはPMMAのいずれか※20

※が不在であると、SPFは再び約2.4に低下した。

【0055】表施例2

別の本発明日焼け止め組成物を表IVに示す。

【0056】

【表5】

表IV

成分	重量%
エチルヘキシル ーメトキシシナメート	7.000
グリセリンKSP	4.000
Monaquat P-TS(登録商標)	3.000
オキシベンゾン	3.000
セチルアルコール	2.500
オクチルパルミテート	2.000
グリセロールモノステアレート	1.500
石油ゼリー	1.000
Silicone Fluid	1.000
Covabead PMMA	0.500
EVAコポリマー	0.500
Quatrisoft LM-200(登録商標)	0.250
香料	0.150
メチルパラベン	0.150
プロピルパラベン	0.100
消泡剤AF	0.005
脱イオン水	適量
合計	100.000

【0057】表施例3

別の本発明日焼け止め組成物を表Vに示す。該組成物はローション形態である。

【0058】

【表6】

表V

成分	重量%
エチルヘキシル p-メトキシシナメート	5.00
グリセリン	4.50
Netester PMA(登録商標)	3.00
スクアラン	2.80
イソステアリン酸	2.50
ココ-カプリラート/カプレート (ココカプリラートとココカプレートの混合物)	2.00
シクロメチコン	2.00
ベンゾフェノン-3	2.00
GYS/P6G-100ステアレート(グリセリルステアレート とポリエチレングリコール100ステアレートの混合物)	2.00
BVAコポリマー	1.20
Amerchol L-101(登録商標) (鯨油とラノリンアルコールの混合物)	1.00
セチルアルコール	1.00
ポリエチレン617	1.00
DL-パントノール	1.00
Covabead PMMA	0.80
ステアリン酸TP	0.50
ベンジルアルコール	0.50
ビタミンEリノレート	0.50
Geruail 115(登録商標)(イミダゾリジニルウレア)	0.50
メチルパラベン	0.30
トリエタノールアミン	0.30

【0059】

【表7】

セテアリールアルコール	0.25
Solulan C-24(登録商標)(Choleth-24及びCeteath-24)	0.25
グリセリルステアレート	0.25
香料	0.25
アラントイン	0.20
ジナトリウムEDTA	0.20
プロピルパラベン	0.15
ビタミンB <sub>12</sub> パルミテート	0.10
ナトリウムデヒドロアセテート	0.10
キサンタンゴム	0.10
Carbopol 941(登録商標)	0.10
fenox IV(登録商標) (コロン結とBIA及びBITの混合物)	0.05
脱イオン水	適量

## 【0060】実施例4

別の本発明日続け止め組成物を表VIに示す。該組成物はクリーム形態である。

## 20 【0061】

【表8】

表VI

成分	重量%
オクチルメトキシシンナメート	7.00
Betester PMA(登録商標)	8.00
セチルアルコール	3.00
ステアリン酸	3.00
ブチレングリコール	3.00
シクロメチコン	2.50
2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン	2.00
セチルオクタノエート	2.00
ジイソプロピルアジバート	2.00
ホホバ油	2.00
GHS/PGC 100ステアレート	2.00
アルミニウムスターチオクテニルスクジネート	2.00
EVAコポリマー	1.20
ポリエチレン617	1.00
ナイロン12	1.00
DL パンテノール	1.00
ブチレングリコール	1.00
Corabead PMA	0.80
ベンジルアルコール	0.60
ビタミンEリノレエート	0.50
Gernall 115(登録商標)	0.50
セテアリアルアルコール	0.50
グリセリルステアレート	0.50
メチルパラベン	0.30

[0062]

【表9】



21

22

トリエタノールアミン98%	0.30
香料	0.25
アラントイン	0.20
Silicone Fluid 200.100cts	0.20
ジナトリウムEDTA	0.20
キサンタンゴム	0.20
エチルパラベン	0.15
ビタミンルルミテート	0.10
ナトリウムDBA	0.10
Carbopol 941(登録商標)	0.10
Tenox IV(登録商標)	0.05
脱イオン水	適量

【0063】上記説明及び実施例は本発明の特定の実施態様を示すものである。これらに照らして、種々の変形

態様が当業者には示唆され、それら全ては本発明の主旨及び範囲に含まれるものとする。